

**MAKE-UP GOODS WITH HIGH MAINTAINABILITY****Publication number:** JP6279253**Publication date:** 1994-10-04**Inventor:** DEYUAN JII KURUJISHIKU**Applicant:** DOW CORNING**Classification:**

**- international:** A61K8/06; A61K8/891; A61Q1/02; A61Q1/10;  
A61Q17/04; A61K8/04; A61K8/72; A61Q1/02;  
A61Q17/04; (IPC1-7): A61K7/42; A61K7/00; A61K7/032;  
A61K7/48

**- european:** A61K8/06; A61K8/891; A61Q1/02; A61Q1/10;  
A61Q17/04

**Application number:** JP19940010300 19940201**Priority number(s):** US19930012682 19930203**Also published as:**

EP0610026 (A1)

US5399342 (A1)

EP0610026 (B1)

**Report a data error here****Abstract of JP6279253**

**PURPOSE:** To obtain a skin care preparation blended with a specified film forming agent and having improved stickiness to the skin. **CONSTITUTION:** A film forming agent made of aq. latex of crosslinkable polydiorganosiloxane is incorporated into a skin care preparation by 5-20 wt.% to obtain the objective cosmetics used as an anti-suntan agent, cosmetics for eyes, etc. The film forming agent is obtd. as follows; polydiorganosiloxane represented by the formula  $\text{HO}(\text{R}_2\text{SiO})_x\text{H}$  [R is a methyl, ethyl, propyl, etc., and (x) is 3-100] is mixed with a surface active anionic catalyst and water to prepare an oil-in-water emulsion. This emulsion is additionally mixed with silane represented by the formula  $\text{R}'\text{aSi}(\text{OR}'<3>)_4\text{-a}$  [R' is 1-12C hydrocarbon, R'<3> is 1-6C alkyl and (a) is 0 or 1], a hydrolyzate of the silane and an alkoxy silicon compd, and is held at 15-30 deg.C for  $\geq 5$  hr until a crosslinked polymer emulsion is formed. The formed emulsion is mixed with a silica sol or silsesquioxane, if necessary and water is removed.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-279253

(43)公開日 平成6年(1994)10月4日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 6 1 K	7/42	7252-4C		
	7/00	J 9051-4C		
	7/032	9051-4C		
	7/48	9051-4C		

審査請求 未請求 発明の数10 OL (全 10 頁)

(21)出願番号	特願平6-10300	(71)出願人	590001418 ダウ・コーニング・コーポレーション DOW CORNING CORPORA TION アメリカ合衆国ミシガン州ミッドランド (番地なし)
(22)出願日	平成6年(1994)2月1日	(72)発明者	デュアン ジー、クルジシク アメリカ合衆国、ミシガン、ミッドラン ド、ウッドビュー バス 5517
(31)優先権主張番号	0 1 2 6 8 2	(74)代理人	弁理士 石田 敬 (外3名)
(32)優先日	1993年2月3日		
(33)優先権主張国	米国 (US)		

(54)【発明の名称】 持続性の高い化粧品

(57)【要約】

【目的】 活性成分を含むスキンケア調合物の皮膚への付着性を高める方法を提供する。

【構成】 スキンケア調合物にフィルム形成剤をその成分として添加し、この活性成分とフィルム形成剤とを含むスキンケア調合物を皮膚に塗る。本発明の特徴は前記フィルム形成剤が架橋されたポリジオルガノシロキサン水性ラテックスであることである。日焼け止め調合物及び目の化粧品が述べられている。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 その成分として5～20wt%のフィルム形成剤をスキンケア調合物に添加し、下記活性成分及び前記フィルム形成成分を皮膚に塗ることを含む顔料、日焼け止め剤、モイスタライザー、及び皮膚軟化剤からなる群から選ばれる活性成分を含むスキンケア調合物の皮膚への付着性を高める方法。但し、前記フィルム形成剤は次のことを含む方法により調製される架橋性ポリジオルガノシロキサン水性ラテックスである：

(A) (1) 式 $\text{HO}(\text{R}^1\text{SiO})_x\text{H}$ （ここに、 $\text{R}^1$ はメチル、エチル、プロピル、フェニル、ビニル、アリル及び3, 3, 3-トリフルオロプロピルから選ばれる基であり、 $x$ は平均値3～100の値をとる。）で示されるポリジオルガノシロキサン100重量部；(2) 前記ポリジオルガノシロキサン1kgあたり15～75ミリモルの界面活性陰イオン触媒であって、ドデシルベンゼンスルホン酸及びラウリルスルホン酸水素から選ばれるもの；及び(3) 水を含む混合物を均質化して、O/Wエマルジョンを形成し；

(B) (i) 式 $\text{R}^2\text{Si}(\text{OR}^3)_2$ （ここに、 $\text{R}^2$ は炭素原子数12までの1価の炭化水素基であり、 $\text{R}^3$ は炭素原子数1～6のアルキル基であり、 $a$ は0又は1の値を取る。）で示されるシラン類；(ii) 前記シランの加水分解産物であって前記ポリジオルガノシロキサンに可溶性であるもの；及び(iii) 前記シラン及び前記部分加水分解産物から選ばれた0.5～15重量部のアルコキシケイ素化合物を混合し；

(C) このエマルジョンを15～30℃で、少なくとも5時間、pH5未満に、架橋ポリマーエマルジョンが形成されるまで保ち；そして随意に

(E) 1重量部を超えるコロイド状シリカゾル又はコロイド状シルセスキオキサンを混合し；水を除くと室温でエラストマーを生ずるラテックスを生成する。

【請求項2】 前記スキンケア調合物が、日焼け止め剤であって、その活性成分として少なくとも1つの紫外線吸収化合物を含むものである請求項1の方法。

【請求項3】 前記紫外線吸収化合物が2-エチルヘキシル-p-メトキシケイ皮酸又は2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノンである請求項2の方法。

【請求項4】 前記スキンケア調合物が、アイブローペンシル、アイブローリキッド、アイシャドー、アイライナー、アイクリーム及びマスカラから選ばれた目の化粧用組成物である請求項1の方法。

【請求項5】 前記目の化粧用組成物がマスカラであり、ロウ、油、及び顔料を含む請求項4の方法。

【請求項6】 フィルム形成剤及びその活性成分として少なくとも1つの紫外線吸収化合物を含む日焼け止め調合物であって、前記フィルム形成剤が請求項1に記載の方法で調製された架橋性ポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスであることを特徴とするもの。

【請求項7】 前記紫外線吸収化合物が2-エチルヘキシル-p-メトキシケイ皮酸又は2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノンである請求項6の日焼け止め調合物。

【請求項8】 フィルム形成剤、顔料、ロウ、及び油を含む化粧品であって、前記フィルム形成剤が請求項1に記載の方法で調製された架橋性ポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスであることを特徴とするもの。

【請求項9】 アイブローペンシル、アイブローリキッド、アイシャドー、アイライナー、アイクリーム及びマスカラから選ばれた目の化粧品である請求項8の化粧品。

【請求項10】 前記フィルム形成剤が5～20wt%存在する請求項8の化粧品。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、改善された皮膚直接性(skin substantivity)特性を有することの見いだされた身体手入れ剤、より詳しくは、着色化粧品を含むスキンケア製品に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 汗汗や水泳により水と接触すると、さもなくば有益なスキンケア製品の有効性を壊してしまうから、皮膚保護製品にとって水及び磨耗に対する抵抗性は重要な性質である。より大きな保護性、高い水抵抗性及び大なるバリアー特性がスキンケア製品に望まれる場合には、これらの目標を達成する為に種々の有機ロウ類、有機樹脂類及び有機ポリマー類をスキンケア製品に入れるのが、当技術分野では通例である。

【0003】

【課題を解決するための手段及び発明の効果】 本発明が発見したのは、ある種のシリコーンを基にした材料が、これまで通例使用されてきた有機ロウ類、樹脂類及びポリマー類の実用的な代替品として用いいうることである。特に、このシリコーンを基にした材料は架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスである。

【0004】 架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスは米国特許No. 4584341(1986年4月22日発行)に記載されているが、この'341特許のラテックスを本発明の態様で使用することは、先に利用されていなかった。即ち、'341特許に関する限り、そこに記載された水性ラテックスの使用は、

(i) 紙及び布はく製品の被覆剤及び含浸剤、(ii) 建造物の被覆材、(iii) フィルム成形製品、(iv) 厚い成形部品、(v) コーキング、及び(vi) 導電性フィルムに関するものである。

【0005】 '341特許には、ここに記載された水性ラテックス組成物が身体の手入れの分野で有用性を持つとゆうようなことは全く示唆されていない。

3

【0006】本発明は、顔料、日焼け止め剤、モイスタライザー、又は皮膚軟化剤のような活性成分を含有するスキンケア調合物の皮膚に対する付着性を高める方法に関する。本発明方法は、スキンケア調合物中にその1成分としてフィルム形成剤を配合し、この活性成分とフィルム形成剤を含むスキンケア調合物を皮膚に塗ることを含む。本発明のフィルム形成剤は、架橋されたポリジオルガノシロキサン水性ラテックスである。

【0007】本発明は更に、フィルム形成剤及び活性成分として少なくとも1つの紫外線吸収化合物を含む日焼け止め調合物に関する。本発明は、この日焼け止め調合物におけるフィルム形成剤として架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスの使用によって特徴付けられる。

【0008】これに加えて、本発明はフィルム形成剤、顔料、ロウ、油、及び保存剤を含む目の化粧品に関する。再び、架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスは、目の化粧品においてフィルム形成剤として用いられる。例えば、活性成分が顔料であるときは、本発明によって、この顔料はまつげに付着させられる。

【0009】本発明のフィルム形成剤は、次のことを含む方法によって調製される架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスとして最良に記述される。

【0010】(A) (1) 式  $\text{HO}(\text{R}_2\text{SiO})_x\text{H}$  (ここに、Rはメチル、エチル、プロピル、フェニル、ビニル、アリル及び3, 3, 3-トリフルオロプロピルから選ばれる基であり、xは平均値3~100の値をとる。) で示されるポリジオルガノシロキサン100重量部；(2) 前記ポリジオルガノシロキサン1kgあたり1

4

5~75ミリモルの界面活性陰イオン触媒であって、ドデシルベンゼンスルホン酸及びラウリルスルホン酸水素から選ばれるもの；及び(3) 水を含む混合物を均質化して、O/Wエマルジョンを形成し；

(B) (i) 式  $\text{R}^1\text{Si}(\text{OR}^2)_3$  (ここに、 $\text{R}^1$  は炭素原子数12までの1価の炭化水素基であり、 $\text{R}^2$  は炭素原子数1~6のアルキル基であり、aは0又は1の値を取る。) で示されるシラン類；(ii) 前記シランの加水分解産物であって前記ポリジオルガノシロキサンに可溶性であるもの；及び(iii) 前記シラン及び前記部分加水分解産物から選ばれた0.5~15重量部のアルコキシケイ素化合物を混合し；

(C) このエマルジョンを15~30℃で、少なくとも5時間、pH5未満に、架橋ポリマーエマルジョンが形成されるまで保ち；そして随意に

(E) 1重量部を超えるコロイド状シリカゾル又はコロイド状シルセスキオキサンを混合し；水を除くと室温でエラストマーを生ずるラテックスを生成する。

【0011】この水性ラテックス及びその製造方法の例は米国特許No. 4, 584, 341に記載されている。この水性ラテックスは、米国、ミシガン州、ミッドランドのダウコーニング社から商業的に入手可能である。

【0012】本発明をより詳細に示すために、この水性ラテックスを含むO/Wエマルジョンマスカラ組成物B~Hを調製した。これら組成物を表1に述べる。マスカラ組成物Hは対照のマスカラとして用いた。マスカラ組成物の種々の成分を、表1に示すようにグループA~Eのように配列した。

【0013】

〔表1〕

成分	マスカラ組成物 (w t %)						
	B	C	D	E	F	G	H
グループA：							
1. 水	47.5	57.5	57.5	57.5	47.5	47.5	57.5
2. マネキアミンシレート	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
3. トリエタノールアミン	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
グループB：							
4. 黒色酸化鉄	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
5. ウルトラマリンブルー	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
グループC：							
6. カルナウバロウ	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
7. キャンデリアロウ	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
8. ステアリン酸	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
9. ミツロウ	5.0	-	-	-	5.0	5.0	5.0
10. 石油留出物 ( I S O P A R (商標) )	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
11 A. C <sub>16</sub> +アルキル基の ポリジメチルシロキサン	-	5.0	-	-	-	-	-
11 B. 11 Aと同じであるが シリコーン主鎖が短いもの	-	-	5.0	-	-	-	-

6

C<sub>22-24</sub> アルキル基のもの

グループD:

12A. 水性シリコンラテックス 10.0

## 12B. シリコン粘着剤

## 12 C. 高分子量シリコーンカラム

$$\text{HOMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_n\text{SiMe}_2\text{OH}$$

グループE:

### 13. ジアゾリジニル尿素

(Germaben(商標)II-E)

1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0

【0014】表1において、グループAの成分2は、コネチカット州ノーウォークのR. T. Vanderbilt Co. Inc. によって、商標VEEGUMのもとに販売されている増粘剤である。グループCの成分10として示されている石油留出物はテキサス州ヒューストンのExxon Chemical Companyによって商標ISOPAR Lの下に販売されている炭素原子数10~12の炭化水素類を含むイソパラフィンの混合物である。グループEの成分13として示された増粘剤GERMABEN (商標) II-Eは、ニュージャージー州チャタムのSutton Laboratoriesの製品であり、商標である。

【0015】表1のマスク材組成物中のフィルム形成剤として用いられた架橋されたポリジオルガノシロキサン水性ラテックスはグループD中成分12Aとして現れている。

【0016】表1において、「現場の」乳化剤が、トリエタノールアミン（成分3）及びステアリン酸（成分8）の組み合わせによって形成される化合物ステアリン酸トリエタノールアミンの形で用いられている。

【0017】

**【实施例】**

(例1) O/Wエマルジョンの形をしたマスカラ組成物B~Hを調製するに当たって、成分1を加熱し、成分2及び3をこの順序で加えた。成分1~3を覆い、85℃に加熱した。グループBの顔料成分4及び5をグループAの成分1~3に加え、ホモジナイザーを用いて分散させた。グループA及びBの成分を85℃に維持した。グループCの成分の全てを共に80℃に加熱し、プロベラミキサーを用いてグループA及びBに加えた。グループA、B及びCを80℃で15分加熱し、50℃に冷却し、グループDを加えた。グループA、B、C及びDを35℃に冷却し、グループEの保存剤Eを加えた。このマスカラ組成物をバイアルに詰め、例2及び3で評価した。

【0018】（例2）表1のマスクラ組成物を貯蔵安定性について評価したところ、40℃及び45℃で6か月後も安定であることが見いだされた。

【0019】（例3）表1のマスクラ組成物B～Hについて、ボランティアによる生体内評価を行った。ボラ

ンティアーはマスカラ組成物を彼らのまつげに塗り、マスカラを洗浄除去することを試した。各マスカラ組成物をまつげから洗浄除去するときの困難さに基づいて評価した。本発明の代表であるマスカラ組成物Bが洗浄除去が最も難しく、マスカラ組成物D及びGがそれに続いたと、ボランティアーは報告した。

【0020】この試験において、表1に成分11A～11C、12B及び12Cとして示された他の種類のシリコンフィルム形成材料を含む他の組成物に対して、組成物Bを評価した。成分11Aは、炭素原子数30のアルキル基を含むアルキルメチル官能性シリコンロウであった。成分11Bは、炭素原子数30のアルキル基を含むアルキルメチル官能性シリコンロウであり、シリコンロウ11Aとシロキサン主鎖の長さについてのみシリコンロウ11Aと異なっていた。ロウ11Bのシロキサン主鎖はロウ11Aのシロキサン主鎖より短かった。成分11Cもシリコンロウ11Aに類似のアルキルメチル官能性シリコンロウであったが、ロウ11Cは炭素原子数22～24のアルキル基を含んでいた。フィルム形成性シリコン成分12Bは医薬等級のシリコン粘着剤であった。成分12Cは式 $\text{HOMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_n\text{SiMe}_2\text{OH}$ （ここに、Meはメチルであり、nは1万の値を持つ整数である。）。

【0021】ボランティアによって報告された試験結果は、ポリビニルピロリドン及びアクリレートを基にしたポリマー類の様な有機フィルム形成剤を含む他のマスカラに対するマスカラ組成物Bの独立の試験によって確認された。

【0022】例1～3及び表1はO/Wエマルジョンの形のマスカラ組成物に関するが、W/Oエマルジョンも同様に配合できる。更に、架構されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックスは、アイブローペンシル、アイブローリキッド、アイシャドー、アイライナー及びアイクリームの様な目の化粧品調合物の調製に用いうる。加えて、前記フィルム形成剤としての水性ラテックスを含むマスカラ組成物はケーキの又はブロックのマスカラ製品、液体マスカラ製品又はクリームマスカラ製品として配合されうると予想される。

【００２３】本発明のマスカラ組成物の調製に用いる  
ロウは、カルナウバ、蜜蝋、セレスイン、パラフィン、キ

ヤンデリア、ベイベリー、モンタン、鯨ロウ、カスターロウ、オゾケライト、フィッシュアトロボスロウ、及びマイクロクリスタリンロウを含む。適当な油は、カスター油、オリーブ油、ジョジョバ油、ステアリン酸、ラノリンアルコール、パラフィン油、及びシリコン流体を含む。顔料の例は、酸化鉄、酸化チタン、ウルトラマリン、酸化クロム、カーボンブラック及び米国政府の食品医薬局（FDA）の公認した有機染料及びレーキを含む。防腐剤は、メチルパラベン、プロピルパラベン、ブチルパラベン、ジアゾリジニル尿素、及びイミダゾリジニル尿素を含む。

【0024】このマスカラ組成物に他の従来の成分、例えば、乳化剤及び界面活性剤；湿潤剤、例えばグリセリン；香料、日焼け止め化合物；ビタミン類；ホルモン類；アミノ酸類；酸化防止剤、例えば没食子酸のプロピル、オクチル、及びドデシルエステル、ブチル化ヒドロキシアニソール、ブチル化ヒドロキシトルエン、及びノルジヒドログアイアレチン酸；増量剤、例えばタルク、マイカ、カオリン、及びセリサイト；感触調節剤、例えば有機エステル及びシリコン液；不透明剤、例えば二

〔表2〕

成分	日焼け止め組成物 (wt %)				
	A	B	C	D	E
相A：					
1. 水	68.21	63.21	70.71	68.57	70.71
2. ポリアクリレート (CARBOPOL (商標) 940)	0.14	0.14	0.14	0.14	0.14
3. グリセリン	2.50	2.50	2.50	2.50	2.50
4. メチルパラベン	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
5. トリエタノールアミン	1.40	1.40	1.40	1.40	1.40
相B：					
6. ステアリン酸	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00
7. セチルアルコール	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
8. DEA-セチルホスフェート (AMPHISOL)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
9. プロピルパラベン	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
相C：					
10. 安息香酸C <sub>12</sub> ~C <sub>16</sub> アルキル (FINSOLV (商標) TN)	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00
11. 2-エチルヘキシル-p- メトキシケイ皮酸 (PARSOL (商標) MCX)	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00
12. 2-ヒドロキシ-4- メトキシベンゾフェノン (UVINUL (商標) M-40)	3.00	5.00	3.00	3.00	3.00
13A. シリコン粘着剤	7.50	-	-	-	-
13B. アクリレートポリマー (POLYTRAP (商標))	-	12.50	-	-	-
13C. シリコンポリマー	-	-	5.00	-	-
13D. ポリジオルガノシロキサン					

酸化チタン及び脂肪族アルコール；芳香剤；並びに溶剤、例えばエタノール、イソプロパノール、及びヘキサメチルジシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサンのような揮発性シリコン類、を含有せしめるのが好ましい。

【0025】本発明のマスカラ調合物は、好ましくは5~20wt%、最も好ましくは10wt%の架橋されたポリジオルガノシロキサンの水性ラテックス；20~60wt%、最も好ましくは30~50wt%の水；4~10wt%のロウ又はロウ混合物；10~20wt%の1又はそれ以上の顔料；1wt%以下の防腐剤；5~15wt%の1又はそれ以上の界面活性剤又は乳化剤；0.2~3.0wt%の増粘剤；0~1wt%の感触調節剤；及び1~4wt%の不透明剤を含む。

【0026】本発明の概念を表2を参照して更に示す。表2は調製された5つの日焼け止め組成物A~Eを示す。日焼け止め組成物A~Eを相A、B及びCとしてグループ分けしている。上記表1中の成分に対応する表2の成分は同様に識別した。どんな差異も以下に示した。

【0027】

9

10

架橋された陽イオン性エマルジョン - - - 7.14 -

13E. 水性シリコンラテックス - - - - 5.00

【0028】表2において、相A中のポリアクリレート増粘剤CARBOPOL (商標) 940は、オハイオ州、クリーブランドのB. F. グッドリッチカンパニーの製品であり、商標である。グリセリンは、湿潤剤として相A中に存在する。相B中の乳化剤AMPHISOL (商標) は、ニュージャージー州、クリフトンのGivaudan Corporationの商標であり、製品である。セチルアルコールは、不透明剤として相B中に存在した。相C中の可溶化剤FINSOLV (商標) TNは、ニュージャージー州、エルムウッドパークのFinetex Incorporatedの製品であり、商標である。相C中の日焼け止め化合物PARSOL (商標) MCXは、ニュージャージー州、クリフトンのGivaudan Corporationの商標であり、製品である。相C中の日焼け止め化合物UVINUL (商標) M-40は、ニュージャージー州、パーシッパニーのBASFコーポレーションの製品であり、商標である。

【0029】相C中のアクリレートポリマーPOLYTRAP (商標) は、ミシガン州、ミドランドのダウコーニングコーポレーションの製品であり、商標である。POLYTRAP (商標) は、マクロポーラスな粒子のマイクロメートルサイズの粉末であり、米国再発行特許No. 33429及び米国特許No. 5035890を含む種々の特許に記載されている。13Cのシリコンポリマーは、ジメチルシリル末端トリフルオロプロピルメチルシロキサンポリマーであった。13Dのシリコン成分は、水中シリコン含量35wt%でpH6の水のように淡い白色のエマルジョンであった。

【0030】(例4)表2中の日焼け止め組成物A~Eは、相Aの諸成分を相互に混合し、この混合物を76℃に加熱することにより調製した。相Bの成分をこの順序に相互に混合し、75℃に加熱した。相Bを相Aに加え、温度は維持した。相Cの成分10~12をこの順序に相互に混合し、溶解するまで加熱した。相Cのこの部分を成分13A~Eに適当に加え、相Cの全部を50℃で相A及びBに加えた。この日焼け止め組成物を、温度が40℃に成るまで攪拌し、評価のためにバイアル中に充填した。

【0031】(例5)日焼け止め組成物A~Eをボランティアーにより生体内で評価した。8分間の浸漬後に皮膚に残っている日焼け止め組成物の量をフーリエ変換赤外分光分析法(FTIR)により測定した。日焼け止め組成物A~Eを、フィルム形成剤としてGANEX (商標) 樹脂を含む市販されている日焼け止め製品に対して評価した。GANEX (商標) は、消費者用日焼け止め製品に広く使用されているポリビニルピロリドンを基とするポリマーであり、ニュージャージー州、ウエインの

International Specialty Productsの製品であり、商標である。測定によれば、本発明の日焼け止め組成物EはGANEX (商標) に対して最良の性能を有するものであった。前記水性ラテックスを含む日焼け止め組成物Eの40%より少し多い量が皮膚上に残った。これに対して、フィルム形成剤としてのGANEX (商標) を含む日焼け止めのみの30%が皮膚上に残った。

【0032】本発明の日焼け止め組成物は、油、ローション、クリーム、又はゲルとして調合できる。これらの例において、組成物がO/Wエマルジョン又はW/Oエマルジョンの形であるときは、1又はそれ以上の界面活性剤が必要であろう。適当な界面活性剤は、ケイ素のない種々の有機乳化剤の内1又はそれ以上を含むであろう。これらの乳化剤は、米国特許No. 4122029及び米国特許No. 4311695に述べられた、ある種のポリジオルガノシロキサン-ポリオキシアルキレンコポリマー類と組み合わせて用いすることに注意すべきである。

【0033】本発明の日焼け止め剤は、米国政府食品医薬品局によって確立された限度量以下で使用される。本発明組成物の調製に用いられる代表的な日焼け止め剤又はこれらの混合物には、4-アミノ安息香酸；ホモメチルサリチレート；2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン；2-フェニルベンズイミダゾール-5-スルホン酸；4-ジメチルアミノ安息香酸-2-エチルヘキシルエステル；4-メトキシケイ皮酸イソアミルエステル；4-メトキシケイ皮酸-2-エチルヘキシルエステル；3-(4'-メチル)ベンジリデン-ボルナン-2-オン；1-(4'-イソプロピルフェニル)-3-フェニル-1-プロパン-1, 3-ジオン；及び1-(4'-t-ブチルフェニル)-3-(4-メトキシフェニル)-プロパン-1, 3-ジオンが含まれる。

【0034】日焼け止め組成物を形成するために用いられる種々の湿潤油には、鉱油、ピーナッツ油、ゴマ油、アボカド油、ヤシ油、ココアバター、アーモンド油、サフラワー油、トウモロコシ油、及び綿実油がある。日焼け止め組成物の展性を改善するために加えうる他の油としては、シリコン流体；及びミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、及びステアリン酸セチルのような脂肪酸エステルがある。受け入れられる消費者用の日焼け止め製品を製造するために必要な、他の従来の補助剤、例えば酸化防止剤、防腐剤、芳香剤(fragrances)及び香料(perfumes)、乳化剤、湿潤剤並びに溶媒を添加してもよい。

【0035】本発明の日焼け止め調合物は、好ましくは5~20wt%、最も好ましくは10wt%の架橋され

たポリジオルガノシロキサンの水性ラテックス；20～60wt%、最も好ましくは30～50wt%の水；1wt%以下の防腐剤；4～8wt%の1又はそれ以上の界面活性剤又は乳化剤；0.1～2.0wt%の増粘剤；0～5wt%の感觸調節剤；0.2～1.0wt%の芳香剤；及び1～4wt%の不透明剤を含む。

【0036】ファンデーションメーキャップの調製において水性ラテックスを使用することを以下の例で説明する。この例において、3つのファンデーションメーキャップA、B及びCを調製し、これらファンデーションメーキャップの各々の処方を表3に示す。ファンデーションメーキャップB及びCは水性シリコンラテックスを含んでいたが、ファンデーションメーキャップAは対照として用いた。

【0037】表3において、SPAN（商標）60はHLB値4.7のノニオン乳化剤である。これは、ソルビタンモノステアレートであり、デラウエア州、ウィルミントンのICIアメリカス インコーポレイテッドの製品である。表3中のCERASYNT（商標）Qは、陰イオン乳化剤であり、グリセロールモノステアレートである。これはニュージャージー州、ベレビルレのVan Dykの製品である。ノニオン乳化剤LIPONIC（商標）EG-1はポリエトキシ化グリセロールであり、ニュージャージー州、バターソンのLipo Chemical Incorporatedの製品である。

【0038】表3の顔料粉砕物は、酸化鉄、タルカム、二酸化チタン、ウルトラマリン（ピンク、バラ色、ブルー）、クロム緑、マンガン紫、カオリン、ベントナイト、シリカ、亜鉛、及び酸化クロムのような1又はそれ

[表3]

成分	ファンデーションメーキャップ (wt%)		
	A	B	C
相A：			
1. 水	62.55	57.55	52.55
2. マグネシウムアルミニウム シリケート	1.00	1.00	1.00
3. PEG-400	5.00	5.00	5.00
4. LIPONIC EG-1	5.00	5.00	5.00
5. トリエタノールアミン	0.20	0.20	0.20
相B：			
6. 顔料粉砕物	10.00	10.00	10.00
相C：			
7. CERAPHYL 140A	2.00	2.00	2.00
8. CERASYNT Q	1.00	1.00	1.00
9. SPAN 60	1.75	1.75	1.75
10. ステアリン酸	0.50	0.50	0.50
11. 揮発性環状シリコン	10.00	10.00	10.00
相D：			
12. 水性シリコンラテックス	—	5.00	5.00
13. GERMABEN（商標）			

以上の顔料を含むうる。

【0039】（例6）表3を参照して、ファンデーションメーキャップA～Cを作るに当たって、相A中の幾つかの成分を表に示された順序で混合した。撈拌を与えるために、ホモミキサーを用いて相Aに顔料粉砕物を加えた。相A及びBに熱を加え、相Cを別に加熱した。相A～Cを組み合わせ、相Dを加えた。このファンデーションメーキャップを冷却し、ボランティアにより評価した。

10 【0040】これらファンデーションメーキャップを、ボランティアの手の平側の前腕に0.05ml塗ることにより、生体で試験した。塗布後、これらファンデーションメーキャップを10分間乾燥させた。各塗布部位になまぬるい水道水を2分間かけた。次いで、この前腕を、皮膚上にどれ程のファンデーションが残っているかについて評価した。本発明のファウンデーションメーキャップB及びCは、水性シリコンラテックスを含まないファウンデーションメーキャップAよりも、水による洗浄除去に対してより抵抗性が高いことを、これらの評価は示した。

20 【0041】ティッシュで擦ってファウンデーションメーキャップを除いたときの試験部位を評価するように、ボランティアは要請された。ティッシュで擦ることによって全てのファウンデーションメーキャップA～Cは除くことができたが、本発明のファウンデーションメーキャップB及びCは、水性シリコンラテックスを含まないファウンデーションメーキャップAよりも多くの色を残すことが報告された。

【0042】



13

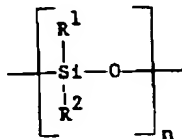
II-E

【0043】上記表1~3及び例1~6に述べた化粧組成物は、皮膚に塗ったとき、皮膚の表面に柔軟で展性のフィルムを残す。従って、これら化粧製品中に含まれる活性成分、例えば日焼け止め化合物は、この柔軟なフィルム中に結合され、発汗、水泳及び運動にも拘わらず、非常に長い間皮膚上に残る。更に、この組成物は改善された物理的耐性を示し、従って皮膚から物理的に擦り取るのは難しい。これらの本発明組成物の明らかな利点は、組成物中に、架橋されたポリジオルガノシロキサン

の水性ラテックスが存在することに帰せられる。  
【0044】本発明組成物の調製に使用できる不揮発性シリコン流体は、粘度5~数百万 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）、好ましくは100~10,000 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）を有する有機ポリシロキサン類である。比較的高い粘度のポリシロキサン及び比較的低い粘度のポリシロキサンの混合物を用いることができる。そのようなポリシロキサンは次の式で示される繰り返し単位を有する。

【0045】

【化1】



【0046】（ここに、nは1より大きな値を持つ整数であり、 $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^2$ は炭素原子数1~7のアルキル基又はフェニル基であり； $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^2$ は同じでも異なってもよい。ポリシロキサンの例は、ポリジメチルシロキサン、ポリジエチルシロキサン、ポリメチルエチルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリジフェニルシロキサン、及び上述のシロキサン類の2又はそれ以上のコポリマーである。

【0047】場合によっては、本発明組成物中に揮発性シリコン流体が含まれているのが望ましい。適当な揮発性シリコン類は低粘度メチルシリコン類である。揮発性低粘度メチルシリコン流体は平均式 $(\text{CH}_3)_a\text{SiO}_{(4-a)/2}$ であり、ここに、aは平均値2~3の整数である。このメチルシリコン流体は $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 結合で結ばれたシロキサン単位を含む。代表的な単位は、 $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{1/2}$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 、 $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{3/2}$ 及び $\text{SiO}_{1/2}$ である。これらの単位は、メチルシリコン流体中にケイ素原子1個当たり平均2個~3個のメチル基が存在するようなモル量で存在し、これによって、メチルシリコン流体が、25℃で測定して粘度100 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）未満となるようにする。

【0048】この揮発性、低粘度メチルシリコン流体は、ジメチルシロキサン単位及び任意にトリメチルシロ

14

1. 00 1. 00 1. 00

キサン単位を含む。好ましくは、このメチルシリコン流体は粘度が10 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）である。代表的な化合物は、一般式 $[(\text{CH}_3)_x\text{SiO}]_y$ で示されるシクロポリシロキサン化合物及び一般式 $(\text{CH}_3)_x\text{SiO}[(\text{CH}_3)_x\text{SiO}]_y\text{Si}(\text{CH}_3)_x$ で示される線状シロキサン化合物である。但し、ここにxは3~10の値を持つ整数であり、yは0~4の値を持つ整数である。

【0049】この揮発性、低粘度メチルシリコン類は一般に250℃より低い沸点を有し、好ましくは、一般に25℃で測定した粘度10 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）未満を有する。最も好ましくは、この粘度は0.65~5.0 $\text{mm}^2/\text{秒}$ （センチストークス）である。このシクロポリシロキサン化合物は、The Cosmetics, Toiletries and Fragrance Association, Inc., Washington, D. C. (CTFA)によって採用された名前“CYCLOMETHICONE”が付けられている。このシクロポリシロキサン類及び線状シロキサン類の両方共、透明な流体で、本質的に無臭で、無害で、べとつかず、刺激性がない。化粧品として、これらのメチルシリコン流体は、皮膚をひりひりさせず、高い展性を示し、塗布したとき容易に擦り取れる。一旦塗布すると、この物質は蒸発して後に何も残さない。

【0050】本発明に使用できるメチルシリコン流体類は、開かれた室内雰囲気中でその周辺部を支持された直径185mmのNo. 1円形濾紙の中心に1gの流体を置いたとき、室温で30分後に実質的に後に何も残さない。メチルシリコン流体とは、2又はそれ以上のケイ素原子を有し、その全てが少なくとも1つの酸素原子を介して少なくとも1つの他のケイ素原子に結合し、少なくとも1つのメチル基に結合して、酸素によって満たされていない各ケイ素原子の原子価はメチル基で満たされている構造体をいう。

【0051】本発明に特に有用であることが見いだされたメチルシリコン流体の代表は、沸点99.5℃を有し、式 $\text{Me}_3\text{SiOSiMe}_3$ で示されるヘキサメチルジシロキサン；沸点152℃を有し、式 $\text{Me}_3\text{SiOMe}_2\text{SiOSiMe}_3$ で示されるオクタメチルトリシロキサン；沸点133℃を有し、式 $[(\text{Me}_2)\text{SiO}]_2$ で示されるヘキサメチルシクロトリシロキサン；沸点171℃を有し、式 $[(\text{Me}_2)\text{SiO}]_3$ で示されるオクタメチルシクロテトラシロキサン；及び沸点205℃を有し、式 $[(\text{Me}_2)\text{SiO}]_4$ で示されるデカメチルシクロペンタシロキサンである。

【0052】これらのメチルシリコン流体は、単独で又は2もしくはそれ以上を組み合わせた混合物として用いる。これらのメチルシリコン流体の混合物は、個

々のメチルシリコーン流体のいずれとも異なる蒸発挙動を有する揮発性物質を生ずる。これらのメチルシリコーン流体及びそれらの調製方法は当技術分野で公知であり、そのような流体は商業的に入手可能である。

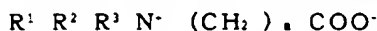
【0053】 場合によっては、メチルシリコーン流体中の1又はそれ以上のメチル基を他の基で置換するのが好ましい。即ち、例えば、炭素原子数2～12のアルキル基；炭素原子数6～10のアリール基；アミン基；ビニル基；ヒドロキシル基；ハロアルキル基；アラルキル基；及びアクリレート基のような置換基が存在してもよい。

【0054】 本発明の組成物は、陰イオン界面活性剤及び両性界面活性剤のような界面活性剤を含みうる。適当な陰イオン界面活性剤としては、スルホン化された及び硫酸化されたアルキル、アラルキル及びアルカリル陰イオン界面活性剤；琥珀酸アルキル；スルフォ琥珀酸アルキル；及びN-アルキルサルコシネートがある。代表的な界面活性剤は、アルキル硫酸、アラルキル硫酸及びアルカリルスルホン酸のナトリウム、マグネシウム、アンモニウム並びにモノー、ジー及びトリエタノールアミン塩である。界面活性剤の前記アルキル基は、一般に全体で12～21の炭素原子を有し、不飽和であってもよく、好ましくは脂肪族アルキル基である。前記硫酸塩（スルフェート）は1分子当たり1～10個のエチレンオキシド単位又はプロピレンオキシド単位を含む硫酸塩（スルフェート）エーテルであり得る。好ましくは、この硫酸塩（スルフェート）エーテルは2～3のエチレンオキシド単位を含みうる。

【0055】 代表的な陰イオン界面活性剤としては、とりわけ、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリルエーテル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸アンモニウム、ラウリル硫酸トリエタノールアミン、 $C_{14-18}$  オレフィンスルホン酸ナトリウム、パレス-25 (pareth-25) 硫酸アンモニウム（合成 $C_{12-15}$  脂肪族アルコール類の混合物の硫酸化ポリエチレングリコールエーテルのアンモニウム塩）、ミリスチルエーテル硫酸ナトリウム、ラウリルエーテル硫酸アンモニウム、モノオレアミドスルフォ琥珀酸二ナトリウム、ラウリルスルフォ琥珀酸アンモニウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ドデシルベンゼンスルホン酸トリエタノールアミン、及びN-ラウロイルサルコシネートがある。

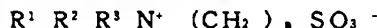
【0056】 両性として一般に分類される界面活性剤としては、ココアンフォカルボキシグリシネート、ココアンフォカルボキシプロピオネート、ココベタイン、N-コカミドプロピルジメチルグリシン、及びN-ラウリル-N-カルボキシメチル-N-(2-ヒドロキシエチル)-エチレンジアミンがある。他の適当な両性界面活性剤としては、米国特許No. 3964500に開示された第四シクロイミデート、ベタイン、及びサルテイン (sultaines) がある。

【0057】 前記ベタインは、次の構造を有する。



【0058】 ここに、 $R^1$  は炭素原子数12～18のアルキル基又はこれらの混合物であり、 $R^2$  及び $R^3$  は独立に炭素原子数1～3の低級アルキル基であり、mは1～4の整数である。特別なベタイン類は $\alpha$ -（テトラデシルジメチルアンモニオ）アセテート、 $\beta$ -（ヘキサデシルジエチルアンモニオ）プロピオネート、及び $\gamma$ -（ドデシルジメチルアンモニオ）ブチレートである。

【0059】 前記サルテイン (sultaines) は、次の構造を有する。



【0060】 ここに、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  及びmは上に定義した通りである。特に有用なサルテインは、3-（ドデシルジメチルアンモニオ）-プロパン-1-スルフォネート及び3-（テトラデシルジメチルアンモニオ）エタン-1-スルフォネートである。

【0061】 本発明の組成物は、脂肪酸アルカノールアミド又はアミノオキシド界面活性剤であるノニオン界面活性剤を含みうる。脂肪酸アルカノールアミドはアルカノールアミン、例えばモノエタノールアミン、ジエタノールアミン、モノイソプロパノールアミン、又はジイソプロパノールアミンと、脂肪酸又は脂肪酸エステルとを反応させてアミドを形成することにより得られるノニオン界面活性剤である。このノニオン界面活性剤の疎水性部分は通常炭素原子数10～21の脂肪酸の炭化水素鎖によって与えられる。この脂肪酸アルカノールアミド界面活性剤としては、脂肪酸ジエタノールアミド、例えばイソステアリン酸ジエタノールアミド、ラウリン酸ジエタノールアミド、カプリン酸ジエタノールアミド、ココナッツ脂肪酸ジエタノールアミド、リノレイン酸ジエタノールアミド、ミリスチン酸ジエタノールアミド、オレイン酸ジエタノールアミド、及びステアリン酸ジエタノールアミド；脂肪酸モノエタノールアミド、例えばココナッツ脂肪酸モノエタノールアミド；並びに脂肪酸モノイソプロパノールアミド、例えばオレイン酸モノイソプロパノールアミド及びラウリン酸モノイソプロパノールアミドがある。

【0062】 前記アミノオキシドは第三アミンを酸化してアミノオキシドを形成することにより得られる公知のノニオン界面活性剤である。それらは時々、極性ノニオン界面活性剤と呼ばれる。アミノオキシド界面活性剤としては、N-アミノオキシド、例えばN-ココジメチルアミノオキシド、N-ラウリルジメチルアミノオキシド、N-ミリスチルジメチルアミノオキシド、及びN-ステアリルジメチルアミノオキシド；N-アシルアミノオキシド、例えばN-ココアミドプロピルジメチルアミノオキシド及びタローアミドプロピルジメチルアミノオキシド；並びにN-アルコキシアルキルアミノオキシド、例えばビス（2-ヒドロキシ

17

エチル) C<sub>12-15</sub> アルコキシプロピルアミンオキサイドがある。アミンオキサイド界面活性剤の疎水性部分は、一般に炭素原子数10~21の脂肪族炭化水素鎖によって提供される。代表的な界面活性剤としては、ラウリン酸ジエタノールアミド、N-ラウリルジメチルアミンオキサイド、ココナツ酸ジエタノールアミド、ミリスチン酸ジエタノールアミド、及びオレイン酸ジエタノールアミドがある。

【0063】追加の種類の界面活性剤としては、陽イオン界面活性剤及び双性イオン界面活性剤のようなものを  
10 含み、その代表的化合物は、米国特許No. 4902499に詳細に述べられている。

【0064】用いる増粘剤としては、アルギン酸ナトリウム、アラビアゴム、ポリオキシエチレン、グアルゴ

18

ム、ヒドロキシプロピルグアルゴム、セルロース誘導体、例えばメチルセルロース、メチルヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリプロピルヒドロキシエチルセルロース、澱粉及び澱粉誘導体、例えばヒドロキシエチルアミロース及び澱粉アミロース、イナゴマメガム、電解質、例えば塩化ナトリウム又はアンモニウム、サッカライド、例えばフラクトース及びグルコース、並びにサッカライドの誘導体、例えばPEG-メチルグルコースジオレエートがある。

【0065】本発明の本質的な態様と概念から離れることなく、ここに記載した化合物、組成物、及び方法について他の変形と修正が可能である。ここに記載した発明の形態は、単なる例であって、特許請求の範囲に記載した発明の範囲を限定しようとするものではない。